PCT/JP96403344

PATENT COOPERATION TREATY

1741

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

NOTIFICATION CONCERNING DOCUMENT TRANSMITTED

United States Patent and Trademark Office (Box PCT) Crystal Plaza 2 Washington, DC 20231 ETATS-UNIS D'AMERIQUE

Date of mailing (day/month/year)

26 August 1998 (26.08.98)

in its capacity as elected Office

International application No.

PCT/JP96/03344

International filing date (day/month/year)
14 November 1996 (14.11.96)

Applicant

OSAKA GAS COMPANY LIMITED et al

RECEIVED

DEC 1 6 1998

GROUP 1700

RECEIVED AROUP 1500

The International Bureau transmits herewith the following documents and number thereof:

copy of the English translation of the international preliminary examination report (Article 36(3)(a))

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer

Sean Taylor

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

P. . ENT COOPERATION TREAT ...

From the INTERNATIONAL BUREAU To: **PCT NOTIFICATION OF ELECTION United States Patent and Trademark** Office (PCT Rule 61.2) (Box PCT) Crystal Plaza 2 Washington, DC 20231 **ETATS-UNIS D'AMERIQUE** Date of mailing (day/month/year) in its capacity as elected Office 24 June 1997 (24.06.97) Applicant's or agent's file reference International application No. P96-32 PCT/JP96/03344 Priority date (day/month/year) International filing date (day/month/year) 14 November 1995 (14.11.95) -- -14 November 1996 (14.11.96) Applicant MORITA, Koichi et al

		. .	04 June 1997 (04.0	6.97)	in the second section of the	•	
	in a notice effecti	: ng later electio	n filed with the Internation	al Bureau on:			•
. The	election X w	as					
	ب	as not					
mac Rule	ب		ths from the priority date o	or, where Rule 32 applie	es, within the time lin	nit under	
mac Rule	de before the expira		ths from the priority date o	or, where Rule 32 applie	s, within the time lin	nit under	
mac Rule	de before the expira		ths from the priority date o	or, where Rule 32 applie	es, within the time lin	nit under	
mac Rule	de before the expira		ths from the priority date o	or, where Rule 32 applie	es, within the time lin	nit under	
mac Rule	de before the expira		ths from the priority date o	or, where Rule 32 applie	s, within the time lin	nit under	

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland **Authorized officer**

K. Takeda

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

EP US

PCT



国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条) [PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 I	9 6 - 3 2	今後の手続きに	こついて			告の送付通知様式(PCT/ISA/220) を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP96/() 3 3 4 4 /	国際出願日	1 4.	11.96		優先日 (日.月.年) 14.11.95	
出願人(氏名又は名称	出願人(氏名又は名称) 大阪瓦斯株式会社						
国際調査機関が作成し この写しは国際事務局			 現則第4	1条(P C	T 1 8 条	条)の規定に従い出願人に送付する。	
この国際調査報告は、	全部で2	_ ページである	Do				
□ この調査報告に引	用された先行打	5術文献の写しも	添付さ	られている。	•		
1. 計求の範囲	田の一部の調査か	「できない(第1	欄参照	a) 。			
2.	-性が欠如してい	いる(第 Ⅱ 欄参照	₹)。				
3. □ この国際出 査を行った		・チド及び/又は	はアミノ	'酸配列リ	ストを含	含んでおり、次の配列リストに基づき国際調	
□ この国際	8出願と共に提出	 されたもの					
□ 出願人か	バこの国際出願と	は別に提出した	もの				
□ しか	、し、出願時の国]際出願の開示の	範囲を	越える事	項を含ま	まない旨を記載した書面が添付されていない	
□ この国際	祭調査機関が書換	えたもの					
4. 発明の名称は	x 出願人が提	出したものを承	認する	· ·			
	□ 次に示すよ	くうに国際調査機	関が作	『成した。			
							
5. 要約は	出願人が提	出したものを承	認する) o			
	査機関が作		、は、こ	の国際調		(PCT規則38.2(b)) の規定により国際調 D発送の日から1カ月以内にこの国際調査機	
6. 要約書とともに公 第図とする。		くしたとおりであ	る。			☒ なし	
	□ 出願人は図	『を示さなかった	-o				
	本図は発明	の特徴を一層よ	く表し	ている。			

A. 発明の属する分野	の分類	(国際特許分類	(I	Р	C))
-------------	-----	---------	-----	---	----	---

Int C1° C 0 1 B 3 1 / 0 2 \ C 0 1 B 3 1 / 0 4 \ H 0 1 M 4 / 5 8 H01M 4/02, H01M10/40, H01M4/02

調査を行った分野

الم اسر.

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int C1° C 0 1 B 3 1 / 0 2 \ C 0 1 B 3 1 / 0 4 \ H 0 1 M 4 / 5 8

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報

1926-1997

日本国公開実用新案公報

1 9 7 1 - 1 9 9 7

日本国登録実用新案公報

1994-1997

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

CAS ONLINE

CARBON?, C. 7440-44-0, PARTICLE, COAT, COVER, d200

C. 関連すると認められる文献

U. Die		
引用文献の		関連する
カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	請求の範囲の番号
P	JP,8-104510,A,(三菱化学株式会社)23.4月.1996,(23.04.96)	1-3, 5, 22-24
	請求項1、[0023]、[0027]-[0042] (ファミリーなし)	
X	JP, 6-267531, A, (三菱油化株式会社) 22.9月.1994, (22.09.94), [0028] (ファミリーなし)	1-3, 5, 22-24
Y	JP, 6-267531, A, (三菱油化株式会社) 22.9月.1994, (22.09.94), [0028] (ファミリーなし)	4, 6, 25
X	JP, S63-242912, A (川崎製鉄株式会社)7.10月.1988(07.10.88)	7, 9, 11, 12, 13,
	請求項1、第5頁右下欄第1行~第6頁左下欄第8行 (ファミリーなし)	
Y	JP, S63-242912, A (川崎製鉄株式会社)7.10月.1988(07.10.88)	10, 14, 15
	│ 請求項1、第5頁右下欄第1行~第6頁左下欄第8行 (ファミリーなし)	
X	JP,5-94838,A (三菱油化株式会社),16.4月.1993(16.04.93),[0067]-[0070] (ファミリー	1-3, 5, 22-24
	(なし)	
Y	JP,5-94838,A (三菱油化株式会社),16.4月.1993(16.04.93),[0067]-[0070] (ファミリー	4, 6, 25
	なし)	
1		

□ C欄の続きにも文献が列挙されている。

□ パテントファミリーに関する別紙を参照。

- * 引用文献のカテゴリー
- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す
- 「E」先行文献ではあるが、国際出願日以後に公表されたも
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する 文献(理由を付す)
- 「〇」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって て出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理 論の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

17.02.97

国際調査報告の発送日

25.02.97

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁(ISA/JP) 郵便番号100

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官(権限のある職員) 後谷 陽一

4 G

9 4 3 9

電話番号 03-3581-1101 内線 3417

PCT

TRANSLATION

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference P96-32	FOR FURTHER ACT		tification of Transmittal of International ary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP 96/03344	International filing date (da 14.11.		Priority date (day/month/year) 14.11.95	
International Patent Classification (IPC) of C01B31/02, C01B31/04,			0/40	
Applicant OSAKA GAS COMPANY LI	MITED.			
This international preliminary example and is transmitted to the applicant.	amination report has been protect according to Article 36.	epared by this Into	ernational Preliminary Examining Authority	
2. This REPORT consists of a total	of 5 sheets, incl	uding this cover s	sheet.	
been amended and are the b	anied by ANNEXES, i.e., so pasis for this report and/or show the Administrative Instru	eets containing r	ription, claims and/or drawings which have ectifications made before this Authority (see PCT).	
These annexes consist of a total o	f 4 sheets.			
3. This report contains indications re	elating to the following items	:		
I X Basis of the report				
II Priority				
III Non-establishment o	f opinion with regard to nove	elty, inventive ste	p and industrial applicability	
IV Lack of unity of the	invention			
	under Article 35(2) with regations supporting such statem		rentive step or industrial applicability:	
VI X Certain documents of	ited			
VII Certain defects in the	international application			
VIII Certain observations on the international application				
Date of submission of the demand	Da	te of completion of	of this report	
04.06.97		2.02.98		
Name and mailing address of the IPEA/JP	Au	thorized officer		
Facsimile No.	Tel	ephone No.		



International Application No.

PCT/JP96/03344

I.	Basis o	f the report				
1.	This re	eport has been draw 14 are referred to in	n on the basis this report as "o	of (Replacement sheets which have originally filed" and are not annexe	been furnished to the receiving Office in red to the report since they do not contain am	sponse to an invitation under endments.):
		the international		originally filed.		
	\boxtimes	the description,	pages	1-43	, as originally filed,	
			pages		, filed with the demand,	
			pages		, filed with the letter of	
			pages		, filed with the letter of	
	\boxtimes	the claims,	Nos.	1-3	, as originally filed,	•
		are ciamis,	Nos.	4-6		1-10
			Nos.		, as amended under Artic	1619,
			Nos.	8-22,27,28,30-37	, filed with the demand,	17 11 07
			Nos.	7,23-26,29	, filed with the letter of	17.11.97 12.01.98
			1103.		, med with the letter of	12.01.98
		the drawings,	sheets/fig		, as originally filed,	
			sheets/fig		, filed with the demand,	
			sheets/fig		, filed with the letter of	,
			sheets/fig		, filed with the letter of	
2.	The an	nendments have res	ulted in the car	ncellation of:	·	
		the description,	pages			
		the claims,	Nos.			
		the drawings,	sheets/fig			
4.		ional observations,		in the Supplemental Box (Rule		

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No. PCT/JP 96/03344

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

Statement			
Novelty (N)	Claims	4,6,7-22,24,27,32-37	_ Y
	Claims	1-3,5,23,25,26,28-31	N
Inventive step (IS)	Claims	7-22,24,32-37	_ Y
	Claims	1-6,23,25-31	_ _ N
Industrial applicability (IA)	Claims	1-37	_ Y
	Claims		N
			_

2. Citations and explanations

Regarding claims 1-3, 5, 23, 26, 28-30:

Document 1 [JP, 6-267531, A] and document 2 [JP, 5-94838, A] cited in the ISR disclose that a carbon material having a carbon material coating of a smaller crystallization degree than that of the core carbon material is obtained by coating the core material with pitch, etc. and firing for coabonizing it (hereinafter the obtained is called a "coated carbon"), carbonized coated carbon is having a specific surface area $5m^2/q$ or smaller and a true density of 2.26g/cm³, and the use of said coated carbon as a cathode material for a nonaqueous lithium secondary battery. (Refer to [0001], [0021], and embodiment 1 in document 1, [0012], [0019], [0026], [0058], embodiment 1 in document 2)

Further, said document 1 mentions that the temperature for firing for carbonization can be as high as 2800°C (which is understood as a temperature at which graphatization occurs). (Refer to [0010])

In documents 1 and 2, even though the coated carbon is ground after the coating step, the obtained is described as having a coating. Therefore, the obtained coated carbon is considered to have at least a part of the edge parts of crystals of the core carbon material being coated with a coating formed with a carbon material.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No. PCT/JP 96/03344

In addition, said coated carbon is in the form of particle and, particles being normally spherical or spheroidal in shape, the shape of said coated carbon is also considered to be identical to that of what is described in the claims.

The documents cited in column VI disclose that a carbon material having a carbon material coating of a smaller crystallization degree than that of the core carbon material has a specific surface area of $5m^2/g$ or smaller and a true density of $1.50-2.26g/cm^3$. Therefore, with the same reasons given for document 1 and document 2, said coated carbon material is considered to be identical to the coated carbon described in the claims in the way the cristal edges are coated, in the shape, and so on.

Regarding claim 31:

Document 1 discloses that a coated carbon is used in solid electrolyte lithium secondary battery.

Document 2 does not mention the use of a coated carbon in a solid electrolyte lithium secondary battery but a solid electrolyte lithium secondary battery is a well-known nonaqueous lithium secondary battery. It would be easy for a specialist of the field concerned to select a solid electrolyte lithium battery as a nonaqueous lithium secondary battery in the invention of document 2.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP96/03344

VI.	Certain	documents	cited

1. Certain published documents (Rule 70.10)

Application No.
Patent No.

Publication date (day/month/year)

Filing date
(day/month/year)

Priority date (valid claim)
(day/month/year)

JP, 8-104510, A

23. 24. 96

30. 09. 94

2. Non-written disclosures (Rule 70.9)

Kind of non-written disclosure

Date of non-written disclosure (day/month/year)

Date of written disclosure referring to non-written disclosure (day/month/year)

特許協力条約

FIGURE 13 FEB. 1998

PCT

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条) [PCT36条及びPCT規則70]

出願人又は代理人					
国際出願番号 PCT/JP96/03344	国際出願日 (日.月.年) 14.11.96	優先日 (日.月.年) 14.11.95			
国際特許分類 (IPC) Int.C1° C01B31/02 C01B31/04 H01M4/58 H01M4/02 H01M10/40					
出願人 (氏名又は名称) 大阪瓦斯株	式会社				
2. この国際予備審査報告は、この表記	1ページである。 容を含む。	- ジからなる。 			
 □ 優先権 □ 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成 Ⅳ 予明の単一性の欠如 ∨ 区 PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明 Ⅵ 区 ある種の引用文献 Ⅵ 国際出願の不備 Ⅶ 国際出願に対する意見 					
国際予備審査の請求書を受理した日	国際予備審査報告を付	作成した日			

- 備審査の請求書を受理した日 04.06.97	国際予備審査報告を作成した日 02.02.98		
なびあて先	特許庁審査官(権限のある職員)	4 G	9439
日本国特許庁(IPEA/JP) 郵便番号100 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	平塚 政宏 用	<i>4</i> 0	417
-, -, -		線	3

, r	3 吹 文 /	n# ~ :	甘7林		
Ι. [国際予備審査報	政告の	些 ლ		
1. 3 加	この国際予備領 な答するためん	審査報行 こ提出。	告は下記の出願書類 された差し替え用紙	に基づいて作成さ は、この報告書に	れた。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に おいて「出願時」とする)
	出願時の国際	禁出願	書類		
X	明細書 明細書 明細書 明細書	第第二二二二二二二二二二二二二二二二二二二二二二二二二二二二二二二二二二二二	1 – 4 3	ページ、 ページ、 ページ、 ページ、	出願時のもの 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
X	請求の範囲 請求の範囲 請求の範囲 請求の範囲 請求の範囲		$ \begin{array}{r} 1 - 3 \\ 4 - 6 \end{array} $ 8-22, 27, 28, 30-37 7, 23-26, 29	項、 項、 項、 項、 可項、	出願時に提出されたもの PCT19条の規定に基づき補正されたもの 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの 17.11.97 付の書簡と共に提出されたもの 12.01.98 付の書簡と共に提出されたもの
	図面 図面 図面 図面	第第二 二 —		ページ/図、 ページ/図、 ページ/図、 ページ/図、 ページ/図、	国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
2. # 	前正により、〕 明細書 請求の範囲 図面	第 _ 第 _	書類が削除された。	ページ 項 ページ/図	
3 🗍	この国際予修 れるので、そ 追加の意見(必	その補豆	正がされなかったも	:したように、補正 のとして作成した。	が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認めら , (PCT規則70.2(c))
,					-
					· .
	-				

ţ)

v.	新規性、 文献及の		こついての法第12条 	e (PCT35条(2)) に定める見解	、それを裏付ける
1.	見解	:	•		
	新規性(N	1)	請求の範囲 ₋ 請求の範囲 ₋	4, 6, 7-22, 24, 27, 32-37 1-3, 5, 23, 25, 26, 28-31	有
	進歩性(Ⅰ	s)	請求の範囲 ₋ 請求の範囲 ₋	7-22, 24, 32-37 1-6, 23, 25-31	有 無
	産業上の和	引用可能性 (I A)	請求の範囲 請求の範囲	1-37	有 無

2. 文献及び説明

・請求の範囲第1-3、5、23,26、28-30項について 国際調査報告で引用された文献1:JP,6-267531,A及び文献2:JP,5-94838,Aに は、ピッチ等によって被覆し、炭化焼成して芯材炭素材料よりも結晶化度の低い炭素材 料によって被覆された炭素材料(以下「被覆炭素」という)が得られる旨、前記炭化前記被覆炭素の比表面積が5m²/g以下、真密度が1.50-2.26g/cm³である旨、前記被覆炭素を非水系リチウム二次電池の負極材料として使用する旨が記載されている。 (文献1[0001]、[0021]、実施例1、文献2[0012]、[0019]、[0026]、[0058]、実

また、前記文献1には、前記炭化焼成温度として2800℃までの温度が使用でき る旨 (黒鉛化される程度の温度と解される。) が記載されている。([0010]参照) 文献 1、2に記載の被覆炭素は被覆工程後に粉砕が行われているが、最終的に被覆 されたものが得られる旨が記載されている以上、芯材炭素材料の結晶のエッジ部分の少なくとも一部は被覆形成用炭素材料により被覆されているものと認められる。 また、前記被覆炭素は粒子であり、通常粒子の形状はほぼ球状乃至楕円体状である から、形状の点においても請求の範囲記載のものと同一であると認められる。

VI欄に記載の文献には、芯材炭素材料より結晶化度の低い炭素材料によって被覆 された炭素材料の比表面積が $5m^2/g$ 以下、真密度が $1.50\sim2.26g/cm^3$ である旨が記載されており、文献1、2と同様の理由により、前記被覆された炭素材料は結晶のエッジ の被覆、形状等において請求の範囲記載の被覆炭素と同一と認められる。

請求の範囲第31項について 文献1には、被覆炭素を固体電解質リチウム二次電池に使用する旨が記載されてい る。

文献2には被覆炭素を固体電解質リチウム二次電池に使用する点については 記載されていないが、固体電解質リチウム二次電池は非水系リチウム二次電池として周知のものであり、文献2に記載の発明において、非水系リチウム二次電池を固体電解質リチウム二次電池とすることは当該技術の専門家が容易に想到しうることであ る。

国際予備審査報	国際出願番号 PCT/JP96/03344			
. ある種の引用文献				
. ある種の公表された文書(PCT	Γ規則70.10)			
出願番号 特許番号	公知日 (日.月.年)	出願日 (日.月.年)	優先日(有効な優先権の (日.月.年)	
JP, 8-104510,	A 23. 24. 96	30. 09. 94		
·				
		<u>.</u>		
書面による開示以外の開示 (PC	C T 規則70. 9)			
	CT規則70.9) 書面による開示以外の開 (日.月.年)	引示の日付 書面によ	よる開示以外の開示に言及し 書面の日付(日. 月. 年)	
	書面による開示以外の限	引示の日付 書面によ		
	書面による開示以外の限	引示の日付 書面によ		
	書面による開示以外の限	引示の日付 書面によ		
	書面による開示以外の限	引示の日付 書面によ		
書面による開示以外の開示の種類	書面による開示以外の限	引示の日付 書面によ		
啓面による開示以外の開示の種類	書面による開示以外の側 (日.月.年)	引示の日付 書面によ		
書面による開示以外の開示の種類 	書面による開示以外の側 (日.月.年)	引示の日付 書面によ		

補充欄 (いずれかの欄の大きさが足りない場合に使用すること)

第 V 欄の続き

・請求の範囲第4項について

文献 1、2には、(110)面方向の結晶子厚みLaについては記載されていない。しかし、Laの値は、d002、Lcの値と同様に炭素材料の結晶性の尺度を示すものとしてよく知られているものであり、Laの値が10nm以上という記載は、黒鉛化度が大きいということを数値を用いて示したものと認められる。一方、文献 1、2に記載の芯材炭素材料はd002、Lcの値からみて、黒鉛化度の大きいものを示すものであるから、その黒鉛化度をLaの値を用いて表現しようとすることは当該技術の専門家が容易に想到し得るることである。

・請求の範囲第6項について 文献1、2には、被覆炭素材料の平均粒径は25μm、7.1μmである旨が記載さ

れている。 粒径の均一な材料を得ようとすることは周知の課題であるから、文献1、2に記載の発明において、1μm以下のような平均粒径よりも小さい粒子をできるだけ少なくしようとすることは当該技術の専門家が容易に想到し得ることである。

- ・請求の範囲第25項について 文献1には真空下で加熱焼成する点について記載されている。([0010]参照)
- ・請求の範囲第27項について 文献1,2には、ピッチ等で芯材を被覆した後、予め酸化処理をすることについては 記載されていないが、ピッチ等の熱可塑性材料を炭化する際に、予め不融化することは 周知技術であり、不融化手段として酸化することもよく知られているから、文献1, 2記載の発明において炭化前に酸化処理をすることは当該技術の専門家が容易に想到 し得ることである。
- ・請求の範囲第1,3項について 国際調査報告で引用された文献3: JP63-242912, Aには、骨材コークスの周囲にキノ リン可溶分を有する炭素粉末について記載されている。
- ・請求の範囲第7-22,24,32-37項について 請求の範囲第7-22,24,32-37項に記載の発明は、国際調査報告に記載された文献に記載されておらず、当該技術分野の専門家が単に先行技術から明白に又は 論理的に導くことができるものであるともいえない。

. -4 *

請求の範囲

- 1. 芯材炭素材料の結晶のエッジ部分の一部または全部が、被覆形成用炭素材料により被覆されており、ほぼ球状乃至楕円体状であることを特徴とする炭素材料。
- 2. BET法により測定される比表面積が、5m²/g以下である請求項1に記載の炭素 材料。
- 3. 芯材炭素材料に比して、被覆炭素材料の結晶化度が低い請求項1または2に 記載の炭素材料。
- 4. 芯材炭素材料が結晶性の高い炭素材料であって、(002)面の平均面間隔(d002)が0.335~0.340nm、(002)面方向の結晶子厚み(Lc)が10nm以上、(110)面方向の結晶子厚み(La)が10nm以上である請求項1~3のいずれかに記載の炭素材料。
- 5. 炭素材料全体の真比重が、 $1.50\sim2.26 g/cm^3$ である請求項 $1\sim4$ のいずれかに記載の炭素材料。
- 6. 粒度分布測定において、体積基準の積算値で1μm以下の粒子が全体の10%以下である請求項1~5のいずれかに記載の炭素材料。
- 7. (補正後) 芯材炭素材料の結晶のエッジ部分の一部または全部が、被覆形成用 炭素材料により被覆されており、ほぼ球状乃至楕円体状であり、粉砕面を有しな いことを特徴とする焼成した二層炭素材料。
- 8. BET法により測定される比表面積が、5m²/g以下である請求項7に記載の焼成した二層炭素材料。
- 9. 芯材炭素材料に比して、被覆炭素材料の結晶化度が低い請求項7または8に 記載の焼成した二層炭素材料。
- 10. 芯材炭素材料が結晶性の高い炭素材料であって、(002)面の平均面間隔(d002)が0.335~0.340nm、(002)面方向の結晶子厚み(Lc)が10nm以上、(110)面方向の結晶子厚み(La)が10nm以上である請求項7~9のいずれかに記載の焼成した二層炭素材料。
- 11. 炭素材料全体の真比重が、1.50~2.26g/cm³である請求項7~10のいずれかに記載の焼成した二層炭素材料。
- 12. 粒度分布測定において、体積基準の積算値で1μm以下の粒子が全

体の10%以下である請求項7~11のいずれかに記載の焼成した二層炭素材料。

- 13. 芯材炭素材料を、被覆形成用炭素材料に浸漬した後、分離された芯材炭素材料に有機溶媒を加え、洗浄し、乾燥し、焼成することを特徴とする表面に被覆層を有する被覆炭素材料の製造方法。
- 14. 芯材炭素材料を、被覆形成用炭素材料に、10~300℃で浸漬した後、分離された芯材炭素材料に有機溶媒を加え、洗浄し、乾燥し、焼成することを特徴とする表面に被覆層を有する炭素材料の製造方法。
- 15. 分離された芯材炭素材料に有機溶媒を加え、10~300℃で洗浄する請求項1 3または14に記載の被覆炭素材料の製造方法。
- 16. 芯材炭素材料を減圧下に被覆形成用炭素材料に浸漬する請求項13~15 のいずれかに記載の被覆炭素材料の製造方法。
- 17. 被覆形成用炭素材料が、石炭系および/または石油系重質油である請求項 13~16のいずれかに記載の被覆炭素材料の製造方法。
- 18. 被覆形成用炭素材料が、タールおよび/またはピッチである請求項13~17のいずれかに記載の被覆炭素材料の製造方法。
- 19. 洗浄に用いる有機溶媒が、トルエン、キノリン、アセトン、ヘキサン、ベンゼン、キシレン、メチルナフタレン、アルコール類、石炭系油および石油系油から選択される少なくとも1種である請求項13~18のいずれかに記載の被覆炭素材料の製造方法。
- 20. 洗浄時の固形分と有機溶剤との割合が、重量比で1:0.1~10の範囲である請求項13~19のいずれかに記載の被覆炭素材料の製造方法。
- 21. 被覆形成用炭素材料/(芯材+被覆形成用炭素材料)の重量比として定義される被覆比(c)が、 $0 < c \le 0.3$ である請求項 $13 \sim 20$ のいずれかに記載の被覆炭素材料の製造方法。
- 22.被覆形成用炭素材料が、予め一次QIの少なくとも一部を除去して、一次QIを3%以下にしたものである請求項13~21のいずれかに記載の被覆炭素材料の製造方法。
- 23. (補正後)請求項1~6のいずれかに記載の被覆炭素材料を炭化焼成する

ことを特徴とする被覆炭素材料の製造方法。

- 24. (補正後)請求項1~6のいずれかに記載の被覆炭素材料を10℃/hr以下の昇温速度で炭化焼成することを特徴とする被覆炭素材料の製造方法。
- 25. (補正後)請求項1~6のいずれかに記載の被覆炭素材料を真空炭化焼成することを特徴とする被覆炭素材料の製造方法。
- 26. (補正後)請求項1~6のいずれかに記載の被覆炭素材料を黒鉛化焼成することを特徴とする被覆炭素材料の製造方法。
- 27. 被覆炭素材料の焼成に先立ち、その表面を予め酸化処理する請求項23~ 26のいずれかに記載の被覆炭素材料の製造方法。
- 28. 請求項1~12のいずれかに記載の炭素材料を構成要素とすることを特徴とするリチウム二次電池。
- 29. (補正後)請求項1~12のいずれかに記載の炭素材料からなる負極材料とすることを特徴とするリチウム二次電池。
- 30. リチウム二次電池が、非水系リチウム二次電池である請求項22または29に記載のリチウム二次電池。
- 31. リチウム二次電池が、固体電解質リチウム二次電池である請求項30のリチウム二次電池。
- 32. 予め一次QIの少なくとも一部を除去して、一次QIを3%以下にした被覆 形成用炭素材料に芯材炭素材料を浸漬した後、被覆形成用炭素材料から芯材炭素 材料を分離し、分離された芯材炭素材料に有機溶媒を加え、洗浄し、乾燥するこ とを特徴とする表面に被覆層を有する被覆炭素材料の製造方法。
- 33. 請求項32に記載の方法で得られた被覆炭素材料を炭化焼成することを特徴とする二層炭素材料の製造方法。
- 34. 請求項32に記載の方法で得られた被覆炭素材料を10℃/hr以下の昇温速度で炭化焼成することを特徴とする二層炭素材料の製造方法。
- 35. 請求項32に記載の方法で得られた被覆炭素材料を真空炭化焼成することを特徴とする二層炭素材料の製造方法。

46/1

- 36. (追加)請求項32に記載の方法で得られた被覆炭素材料を黒鉛化焼成することを特徴とする二層炭素材料の製造方法。
- 37. (追加)被覆炭素材料の焼成に先立ち、その表面を予め酸化処理する請求項33~36のいずれかに記載の二層炭素材料の製造方法。

PCT

The undersigned requests that the present international application be processed according to the Patent Cooperation Treaty

For receiving Office use only				
International Application No.				
International Filing Date				
Name of receiving Office and "PCT International Application"				
Applicant's or agent's file reference				

according to the Patent Cooperation Treaty. P96-32 (if desired) (12 characters maximum) TITLE OF INVENTION MATERIAL FOR NEGATIVE ELCTRODE OF LITHIUM SECONDARY Box No. I BATTERY, METHOD FOR PRODUCTION THEREOF AND LITHIUM SECONDARY BATTERY USING Box No. II **APPLICANT** (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country.) Name and address: This person is also inventor. : OSAKA GAS COMPANY LIMITED Name Telephone No. : 1-2, Hiranomachi 4-chome, Chuo-ku, Address Facsimile No. Osaka-shi, Osaka 541, JAPAN Telepriater No. State (i.e. country) of residence: State (i.e. country) of nationality: Japan Japan the United States of America only the States indicated in the Supplemental Box all designated States all designated States except the United States of America This person is applicant for the purposes of: Box No. III FURTHER APPLICANT(S) AND/OR (FURTHER) INVENTOR(S) (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country.) Name and address: This person is: : SHARP CORPORATION Name applicant only : 22-22, Nagaike-cho, Abeno-ku, Address applicant and inventor Osaka-shi, Osaka 545, JAPAN inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.) State (i.e. country) of residence: State (i.e. country) of nationality: Japan Japan the States indicated in all designated States except the United States of America the United States all designated This person is applicant the Supplemental Box of America only for the purposes of: X Further applicants and/or (further) inventors are indicated on a continuation sheet. AGENT OR COMMON REPRESENTATIVE; OR ADDRESS FOR CORRESPONDENCE The person identified below is hereby/has been appointed to act on behalf of the applicant(s) before the competent International Authorities as: common representative agent (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country.) Telephone No. Name and address: 06-203-0941 Registration Number: 6521 : SAEGUSA Eiji Name Facsimile No. : Kitahama TNK Building, 7-1, Address 06-222-1068 Dosho-machi, 1-chome, Chuo-ku, Telepriater No. Osaka-shi, OSAKA 541, JAPAN Mark this check-box where no agent or common representative is/has been appointed and the space above is used instead to

indicate a special address to which correspondence should be sent.

Continuation of Box N . III FURTHER APPLICANTS AND/OR (FURTHER) INVENTORS							
If none of the following sub-boxes is used, this sheet is not to be included in the request.							
Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country.) This person is:							
Name : MORITA Koichi	applicant only						
Address : 1-25-47-203, Hashiridani, Osaka 573, JAPAN	, Hirakata-shi,	x applicant and inventor					
		inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)					
State (i.e. country) of nationality:	State (i.e. country) of resi	denœ:					
Japan	<u> </u>	Japan					
This person is applicant all designated for the purposes of:		United States America only the Supplemental Box					
Name and address: (Family name followed by given name; for a designation. The address must include postal co	legal entity, full official de and name of country.)	This person is:					
Name : FUJIWARA Hiromi		applicant only					
Address : 18-2, Ibukino 1-chome, I Osaka 594, JAPAN	zumi-shi,	X applicant and inventor					
		inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)					
State (i.e. country) of nationality:	State (i.e. country) of res	_					
Japan	<u> </u>	Japan					
This person is applicant all designated for the purposes of:	States except the states of America X of America	United States America only the Supplemental Box					
Name and address: (Family name followed by given name; for designation. The address must include postal of	a legal entity, full official code and name of country.)	This person is:					
Name : NAKAGAWA Yoshiteru	applicant only						
Address: 370, Koizumi-cho, Yamato Nara 639-11, JAPAN	koriyama-shi,	X applicant and inventor					
		inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)					
		·					
State (i.e. country) of nationality: State (i.e. country) of residence: Japan Japan							
This person is applicant all designated all designated States except X the United States indicated in the Supplemental Box							
Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official							
Name : KATSUURA Masamitsu		This person is:					
Address : 6-3-4-506, Torishima, Ko		X applicant and inventor					
Osaka-shi, Osaka 554, <u>JAPAN</u> inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)							
State (i.e. country) of nationality: State (i.e. country) of residence:							
Japan Japan							
This person is applicant all designated all designated States except the United States of America of America only the States indicated in the Purposes of:							
X Further applicants and/or (further) inventors are indicated on another continuation sheet.							

Continuation of Box No. III FURTHER APPLICANTS AND/OR (FURTHER) INVENTORS								
If none of the following sub-boxes is used, this sheet is not to be included in the request.								
Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country.) This person is:								
Name : MATSUYOSHI Hiroaki	applicant only							
Address : 2-14-2, Kanaoka, Higashi (Osaka 577, JAPAN	Osaka-shi,							
OSCIACION, <u>Grazav</u>	inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)							
State (i.e. country) of nationality:	State (i.e. country) of residence:							
Japan	Japan							
This person is applicant all designated all designated the United States	States except the United States the States indicated in the Supplemental Box							
Name and address: (Family name followed by given name; for a designation. The address must include postal co	legal entity, full official deand name of country.) This person is:							
Name : NISHIMURA Naoto	applicant only							
Address : 192-1, Hajikami, Shinjo-cl Kitakatsuragi-gun, Nara 6								
	inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)							
State (i.e. country) of nationality: Japan	State (i.e. country) of residence: Japan							
	about Indicated in							
for the purposes of: States the United Sta	tes of America X of America only the Supplemental Box							
Name and address: (Family name followed by given name; for a designation. The address must include postal control of the contr	legal entity, full official ode and name of country.) This person is:							
Name : TSUKUDA Yoshihiro	applicant only							
Address: 4-1-9-306, Oji-cho, Abeno Osaka-shi, Osaka 545, JAP	i ix i applicant and inventor							
	inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)							
State (i.e. country) of nationality:	State (i.e. country) of residence:							
Japan	Japan States except the United States the States indicated in							
	ates of America X of America only the Supplemental Box							
Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country.) This person is:								
Name : MINATO Kazuaki	applicant only							
Address: 5-1-2-1308, Shiginonishi, Osaka-shi, Osaka 536, JAP	1 X 1 application and the contraction							
<u></u>	inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)							
State (i.e. country) of nationality:	State (i.e. country) of residence: Japan							
This person is applicant all designated for the purposes of:	d States except tates of America only the States indicated in the Supplemental Box							
TX Further applicants and/or (further) inventors are indicated on another continuation sheet.								

Continuation of Box No. III FURTHER APPLICANTS AND/OR (FURTHER) INVENTORS							
If none of the following sub-boxes is used, this sheet is not to be included in the request.							
Name and address: (Family name followed by given name; for a designation. The address must include postal control of the second	This person is:						
State (i.e. country) of nationality:	State (i.e. country) of residence:						
Japan	Japan						
This person is applicant all designated all designated for the purposes of:	States except ales of America only the States indicated in the Supplemental Box						
Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country.) Name: YAMADA Kazuo: Address: YAMADA Kazuo: applicant only Address: 500-4, Hikita, Shinjo-cho, Kitakatsuragi-gun, Nara 639-21, JAPAN: inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)							
State (i.e. country) of nationality:	State (i.e. country) of residence:						
Japan	Japan						
	States except X the United States the States indicated in of America only the Supplemental Box						
Name and address: (Family name followed by given name; for designation. The address must include postal and the state of t	applicant only -bancho, X applicant and inventor						
State (i.e. country) of nationality:	State (i.e. country) of residence:						
Japan Japan Japan This person is applicant all designated lateral States except							
Name and address: (Family name followed by given name; for designation. The address must include postal	a legal entity, full official						
State (i.e. country) of nationality:	State (i.e. country) of residence:						
This person is applicant all designated all designated for the purposes of:	ed States except the United States the States indicated in States of America only the Supplemental Box						
Further applicants and/or (further) inventors are indicated on another continuation sheet.							

Consider should (futer 1003) reprint fanuary 1005)

See Notes to the request form

Box No.V DESIGNATION OF STATES									
The following designations are hereby made under Rule 4.9(a) (mark the applicable check-boxes; at least one must be marked):									
Region	nal Pa	tent							
AP ARIPO Patent: KE Kenya, MW Malawi, SD Sudan, SZ Swaziland and any other State which is a Contracting State of the Harare Protocol and of the PCT									
EP European Patent: AT Austria, BE Belgium, CH and LI Switzerland and Liechtenstein, DE Germany, DK Denmark, ES Spain, FR France, GB United Kingdom, GR Greece, IE Ireland, IT Italy, LU Luxembourg, MC Monaco, NL Netherlands, PT Portugal, SE Sweden, and any other State which is a Contracting State of the European Patent Convention and of the PCT									
OA OAPI Patent: BF Burkina Faso, BJ Benin, CF Central African Republic, CG Congo, CI Côte d'Ivoire, GA Gabon, GN Guinea, ML Mali, MR Mauritania, NE Niger, SN Senegal, TD Chad, TG Togo, and which is a member State of OAPI and a Contracting State of the PCT (if other kind of protection or treatmer on dotted line)									
Nation	nal Pa	tent (if other kind of protection or treatment desired, specify	on de	xted li	ne):				
	AM	Armenia		MD	Republic of Moldova				
Ħ	ΑT	Austria		MG	Madagascar				
ī		Australia		MN	Mongolia				
		Barbados		MW	Malawi				
	ВG	Bulgaria		MX	Mexico				
		Brazil		NL	Netherlands				
H		Belarus			Norway				
		Canada		NZ	New Zealand				
		H and LI Switzerland and Liechtenstein		PL	Poland				
		China		PT	Portugal				
		Czech Republic	\Box	RO	Romania				
ᅵ片		Germany	口	RU	Russian Federation				
		Denmark		SD	Sudan				
		Estonia	\Box	SE	Sweden				
		Spain		SI	Slovenia				
	FI	Finland		sĸ	Slovakia				
		United Kingdom		TJ	Tajikistan				
		Georgia	\sqcap	TT	Trinidad and Tobago				
		Hungary	Ħ		Ukraine				
	JP	Japan		US	United States of America				
	-	Kenya							
	•	Kyrgyzstan	\Box	UZ	Uzbekistan				
		Democratic People's Republic of Korea	\sqcap		Viet Nam				
	1	Democratic respire a respective extraction							
E	l Kb	Republic of Korea	Che	eck-b	oxes reserved for designating States (for the purposes of all patent) which have become party to the PCT after				
		Kazakhstan	a n issu	auona ance	of this sheet:				
-		Sri Lanka							
-	, –	Liberia	\sqcap	1					
-	:	Lithuania	\Box	,					
-	,	Luxembourg	\sqcap						
-	_	Latvia	\sqcap						
-	•								
1- 0	In addition to the designations made above, the applicant also makes under Rule 4.9(b) all designations which would be permitted								

In addition to the designations made above, the applicant also makes under Rule 4.9(b) all designations which would be permitted under the PCT except the designation(s) of

The applicant declares that those additional designations are subject to confirmation and that any designation which is not confirmed before the expiration of 15 months from the priority date is to be regarded as withdrawn by the applicant at the expiration of that time before the expiration of 15 months from the priority date is to be regarded as withdrawn by the applicant at the expiration and confirmation. limit. (Confirmation of a designation consists of the filing of a notice specifying that designation and the payment of the designation and confirmation fees. Confirmation must reach the receiving Office within the 15-month time limit.) Supplemental Box If the Supplemental Box is not used, this sheet need not be included in the request.

Use this box in the following cases:

1. If, in any of the Boxes, the space is insufficient to furnish all the information:

in particular:

- (i) if more than two persons are involved as applicants and/or inventors and no "continuation sheet" is available:
- (ii) if, in Box No. II or in any of the sub-boxes of Box No. III, the indication "the States indicated in the Supplemental Box" is checked:
- (iii) if, in Box No. II or in any of the sub-boxes of Box No. III, the inventor or the inventor/applicant is not inventor for the purposes of all designated States or for the purposes of the United States of America:
- (iv) if, in addition to the agent(s) indicated in Box No. IV, there are further agents:
- (v) if, in Box No. V, the name of any State (or OAPI) is accompanied by the indication "patent of addition," or "certificate of addition," or if, in Box No. V, the name of the United States of America is accompanied by an indication "Continuation" or "Continuation-in-part":
- (vi) if there are more than three earlier applications whose priority is claimed:
- 2. If the applicant claims, in respect of any designated Office, the benefits of provisions of the national law concerning non-prejudicial disclosures or exceptions to lack of novelty:

in such case, write "Continuation of Box No. ..." [indicate the number of the Box] and furnish the information in the same manner as required according to the captions of the Box in which the space was insufficient;

in such case, write "Continuation of Box No. III" and indicate for each additional person the same type of information as required in Box No. III;

in such case, write "Continuation of Box No. II" or "Continuation of Box No. III" or "Continuation of Boxes No. II and No. III" (as the case may be), indicate the name of the applicant(s) involved and, next to (each) such name, the State(s) (and/or, where applicable, ARIPO, European or OAPI patent) for the purposes of which the named person is applicant;

in such case, write "Continuation of Box No. II" or "Continuation of Box No. III" or "Continuation of Boxes No. II and No. III" (as the case may be), indicate the name of the inventor(s) and, next to (each) such name, the State(s) (and/or, where applicable, ARIPO, European or OAPI patent) for the purposes of which the named person is inventor;

in such case, write "Continuation of Box No. IV" and indicate for each further agent the same type of information as required in Box No. IV;

in such case, write "Continuation of Box No. V" and the name of each State involved (or OAPI), and after the name of each such State (or OAPI), the number of the parent title or parent application and the date of grant of the parent title or filing of the parent application;

in such case, write "Continuation of Box No. VI" and indicate for each additional earlier application the same type of information as required in Box No. VI.

in such case, write "Statement Concerning Non-Prejudicial Disclosures or Exceptions to Lack of Novelty" and Jurnish that statement below.

CONTINUATION OF BOX NO.III

SHARP CORPORATION

EР

CA Canada

CN China

KR Korea

CONTINUATION OF BOX NO. IV

Name : KAKEHI Hiromichi Registration Number : 7651

The same address as box IV

Name : OHARA Takeshi Registration Number : 8642

The same address as box IV

Name : SATO Tominori Registration Number : 10460

Address: c/o OSAKA GAS COMPANY LIMITED

19-9, Torishima 6-chome, Konohana-ku,

Osaka-shi, OSAKA 554, <u>JAPAN</u>

		Sheet No.				-1			
Box No. VI PRIORITY C				ty claims are ind	icated in the Sup	plemental B	× []		
The priority of the following earlier application(s) is hereby claimed: Office of filing									
Country (in which, or for which, the application was filed)	Filing (daylmon				o. in	(only for regional or international application)			
item (1)	14.11.95	5	Pate	ent Applica	ation				
Japan	(14 November	er, 1995)	No.	295462/19	95				
item (2)									
item (3)									
Mark the following check-box if the certified copy of the earlier application is to be issued by the Office which for the purposes of the present international application is the receiving Office (a fee may be required): The receiving Office is hereby requested to prepare and transmit to the International Bureau a certified copy of the earlier application(s) identified above as item(s):									
	ONAL SEARCHI								
Choice of International Searc	hing Authority (IS	A) (If two or more)	Internationsen; the t	onal Searching Aut vo-letter code may	thorities be used): ISA/_	JP			
Earlier search Fill in where a see out or requested and the Authority such search or request either by re Country (or regional Office):	arch (international, ir is now requested to be ference to the relevar	nternational-type of	rother) by	the International S	Searching Authorit e on the results of th	y has already b nat earlier sea och request:	een carried rch. Identify		
Box No. VIII CHECK LIS	т								
the following number of shifted in the following number of shifted in the following number of shifted in the following number of shifted	This international application contains the following number of sheets: 1. request : 7 sheets 2. description : 43 sheets 3. claims : 3 sheets 4. abstract : 1 sheets 5. drawings : 0 sheets Total : 54 sheets This international application is accompanied by the item(s) made attorney Total : 50 made attorney To						concerning ms o acid te)		
For receiving Office use only									
1. Date of actual receipt of the purported international application:									
timely received papers or drawings completing the purported international application:									
4. Date of timely receipt of the required corrections under PCF Article 11(2):							not received:		
5. International Searching Authority Specified by the applicant: 6. Transmittal of search copy delayed until search fee is paid									
Date of receipt of the recor by the International Bureau	d copy	- For Internation	al Burca	u use only		as Motor to	La sequest la		

Form PCT/RO/101 (last sheet) (January 1994; reprint January 1995)

See Notes to the request form